

ミクロスケールからの現象解明に基づいた炭化水素資源の増進回収法の開発

末包 哲也^{1*}

R&D on Enhanced Recovery Schemes of Hydrocarbon Resources Based on the Clarification of Mechanisms on a Micro Scale.

by
Tetsuya SUEKANE

An important aspect of any enhanced oil recovery (EOR) process is the effectiveness of process fluids in removing oil from the rock pores at the microscopic scale. Capillary and viscous forces govern phase trapping and mobilization of fluids in porous media. Understanding the role of pore-level mechanisms is essential to the design of EOR process in oil-fields. In present study, first, we observed the pore-scale mechanisms of surfactant flooding and water-alternated-gas (WAG) scheme by using the porous plates. Reduction in the interfacial tension between oil and water due to surfactant results in the enhancement of oil productivity. During this process, some fraction of oil tends to be in an emulsion state, which suggests that the snap-off mechanisms are changed with the reduction in surface tension. In WAG processes, injection of gas both before and after surfactant injection facilitates to bring surfactant to the interface between oil and water by blocking the paths of water break-through. Finally, the oil trapping process in water flooding was visualized in a three-dimensional packed bed of glass beads by means of X-ray CT scanning. Piston-like displacement in a pore-network scale is primary mechanism in oil trapping comparing with the snap-off at pore-throat.

Key Words: surfactant, porous plate, gas flooding, enhanced oil recovery, trapping mechanism, snap-off

1. 緒言¹

近年、新興国の経済発展に伴い原油への需要が急激に高まっている。現代社会は、一次エネルギーの大半を化石燃料に依存しているが、これを代替できるエネルギーは再生可能エネルギーと原子力エネルギーの2つである。温暖化防止の観点から再生可能エネルギーの研究開発で盛んに行われているが、エネルギー密度の低さや出力調整が困難などの問題があり、直ちに化石燃料を代替することは難しい。一方で原子力は技術的に成熟しているものの、安全性の担保や単一エネルギー源に依存することのエネルギー安全保障の観点からの問題により、原子力のみへの急激な依存もまた困難である。よって、21世紀中は依然として化石燃料に依存しなければならない。安定的な化石燃料の供給確保は安定的な経済発展や次世代エネルギーへのソフトライディングを達成する上で必要不可欠である。

貯留岩内部に包蔵される原油は坑井を掘削することにより、油層が持っている圧力により流動化・回収することができる。しかし、一部の原油を生産した後に貯留層内部の圧力は速やかに低下し、それ以上、生産を継続することはできない。よって、水を圧入し、油層の圧力を維持することにより、生産性を確保する水攻法が採用される。この手法を用いても原油のおよそ半分は回収することができず、原油は貯留層内部にトラップされてしまう。微視的には、油がスナップオフされることにより、毛管力による保持力が水の流れによる粘性力あるいは圧力勾配に比べ強くなるために、岩石内部にトラップされる。よって、原油増進回収法(EOR)として、界面活性剤の注入による界面張力の低下(サーファクタントフラッディング⁽¹⁾⁽²⁾)、超臨界CO₂によるミシブル化(CO₂フラッディング⁽³⁾)、ガスと水の交互圧入による掃き出し効率の向上(WAG法)などがすでに実用化されている。

本研究は、微視的なスケールからの現象の解明に基づいて、原油のトラップメカニズムを明らかにし、生産性向上の指針を得ることを目的とする。はじめに、可視化が容易な2次元多孔質体を用いて、サーファクタントフラッディングとWAG法を対象として、空隙スケールでの流動現象を明らかにする。次に、より実多孔質構造に近い充填層を用いて、原油のトラップメカニズムをX線CTを用いて可視化すること

¹ 徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部

Department of Mechanical Engineering, Graduate School of Engineering, The University of Tokushima

* 連絡先: 〒770-8506 徳島市南常三島町2-1

徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部

のより、現象の解明を行う。

2. ポーラスプレートによる EOR プロセスの可視化

2.1 ポーラスプレート

実験には Fig. 1 に示すような 2 次元の模擬多孔体を用いた。32.2 mm×68.4 mm の領域に円形のポアを配位数 4 の流路でつなぐことにより、ポアネットワークを再現している。ポアの直径は 450, 585, 720, 855, 900 μm の 5 種, 1502 個で、流路の幅は 90, 117, 144, 171, 198 μm の 5 種であり、それぞれの出現頻度が正規分布に近い 11.5, 23.0, 31.0, 23.0, 11.5% となるようにしている⁽⁴⁾。ポアおよび流路の深さは 90 μm であり、ポアネットワーク部分の面積空隙率は 0.30 である。プレートは石英ガラス製であり、ポアネットワークをブラスト加工した後、オプティカルコンタクトにより接合されている。

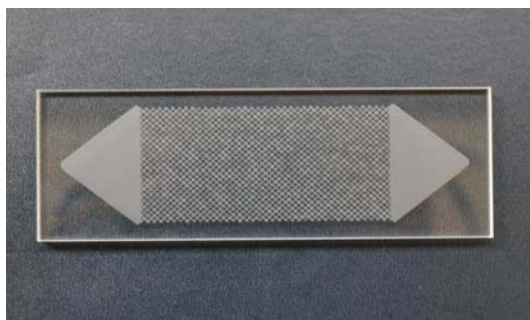


Fig. 1 porous plate.

2.2 実験手法

毛管力と粘性力の相対的な大きさを表す無次元数キャピラリー数は以下のように表される。

$$Ca = \frac{\mu U}{\gamma} \quad (1)$$

ここで、 μ : 水の粘度, U : 水のダルシー流速, γ 水と油の界面張力である。

Fig. 2 に実験装置の概略を示す。ポーラスプレートを最初、原油を模擬した n-ドデカンで満たす。次に、ポーラスプレートを水平に設置し、シリンジポンプを用いて所定の Ca 数になるように一定流量で水、界面活性剤、空気を注入する。各段階において、上部から写真撮影を行う。各相の判別を容易にするために、水はメチレンブルーで、n-ドデkanはスーダンレッドでそれぞれ染色されている。

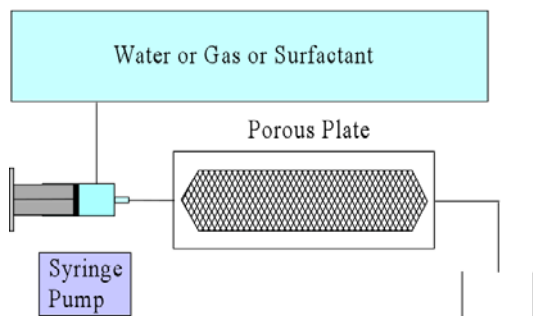
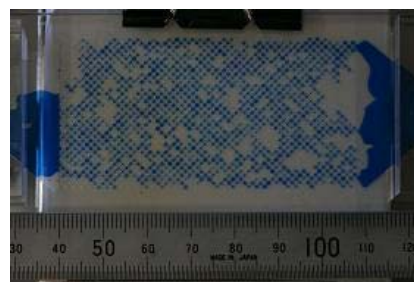


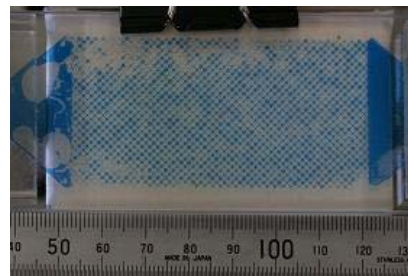
Fig. 2 Experimental setup.

2.3 サーファクタントフラッディング

Ca 数を 1.0×10^{-6} として水および界面活性剤を圧入したと



(a) Water flooding



(b) Surfactant flooding

Fig. 3 Distribution of trapped oil at the capillary number of 1.0×10^{-6}

きのオイル生産の様子を Fig. 3 に示す。なお、 Ca 数にはともに水の界面張力を用いており、 Ca 数が同じとき、圧入流速が同じことを意味している。ポーラスプレートは最初、n-ドデカンで満たされており、Fig. 3 において左側から水またはサーファクタントが圧入され、右側から生産されている。水攻法の場合、数個から十数個のポアに渡って広がっている比較的大きな残留オイルが観察されている。一方、サーファクタントフラッディングの場合、大きな残留オイルの個数が低下し、生産性の向上が観察されている。一方、ポアスケールでは、エマルジョン化も進んでおり(Fig. 4)、約 5%のポアにおいて、オイル液胞が細分化されてトラップされていた。流体の圧入速度が同じであっても、界面張力の違いにより、オイルの剪断のされやすさが変化し、オイルがスナップオフされるプロセスに変化が生じているために、残留量に変化が現れたと推察することができる。今回は、剪断の過渡的な現象を捉えていないが、今後、スナップオフプロセスを詳細に検討する必要がある。

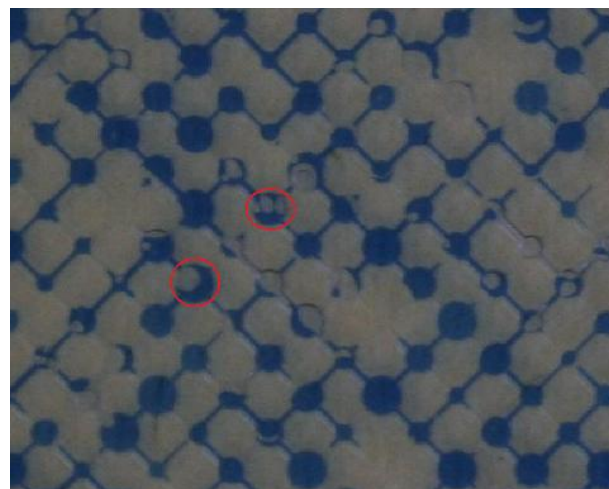


Fig. 4 Close up view of trapped oil droplets shown in Fig. 3b in surfactant flooding at the capillary number of 1.0×10^{-6} .

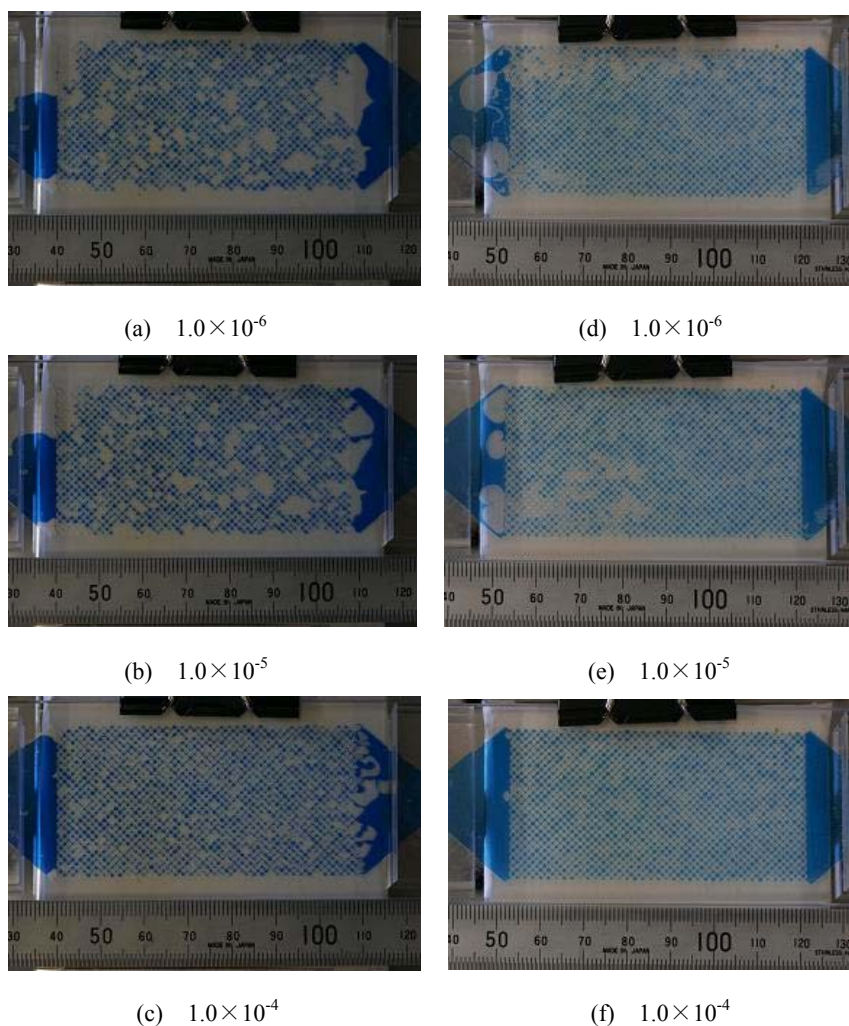


Fig. 5 Effect of capillary number on oil production for water flooding (a-c) and for surfactant flooding (d-f).

残留オイル飽和率に与える界面活性剤および Ca 数の影響を Fig. 5, 6 に示す。両者ともに Ca 数, すなわち圧入流速の増加とともに残留オイル飽和率が低下し, 生産性の向上が確認できる⁽⁴⁾⁽⁵⁾。 Ca 数が 1.0×10^{-6} のときの水の残留オイル飽和率に注目すると, 流速を 100 倍にすることで, 残留飽和率が約 15% に低下しているのに対して, 界面活性剤により約

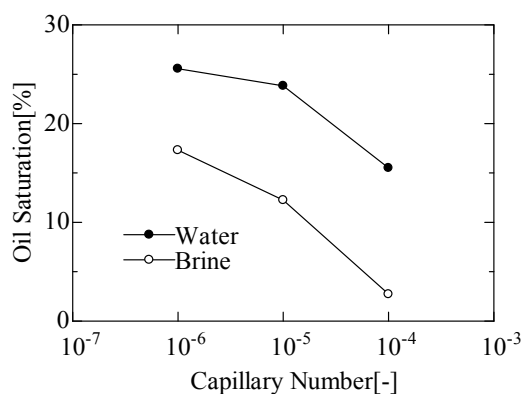


Fig. 6 Effect of surfactant and Ca number on residual oil saturation.

18% に低下している。今回, 界面活性剤により界面張力がどの程度低下しているか計測できていないが, 一般的におよそ数十分の一に低下すると言われている。式 1 からわかるように残留ガス飽和率は Ca 数で整理することができ, 界面張力の低下は流速の増加と同じ寄与を期待することができる。

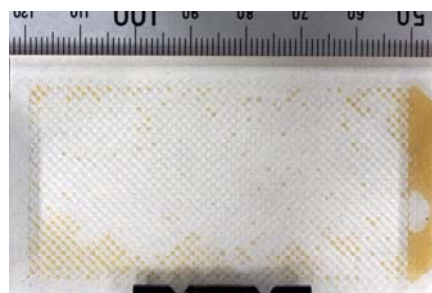
今回の実験では, Ca 数で 10^{-4} に相当する非常に高い流速ではあるが, 界面活性剤により残留オイル飽和率を 2% 程度にまで低下させることができた。実際の現場では, よほど浸透性が高い貯留層でない限り, このような高い Ca 数での水や界面活性剤の圧入は, 圧入井周りの圧力上昇を引き起こし, 断層のずれやフラクチャリングを生じる可能性がある。また, 界面活性剤の注入はコストの上昇を招くために, 注入量を削減するための効果的な注入手法の開発が必要となる。次節では, 界面活性剤攻法のコスト削減を目指してガス圧入を併用した WAG プロセスについて検討を行う。

2.4 WAG 法

水攻法後のガスドライブ⁽⁶⁾や界面活性剤との複合によるフォームドライブによる生産性の向上が指摘されている。本研究でもガスドライブによる生産性向上のメカニズムをポーラスプレートを用いて調べた。

まず, サーフアクタントフラッディングの生産性を制限している原因を明らかにするために, 油で満たしたポーラスプレートに対して, 水 (clear), 水 (blue), サーフアクタントの順で流した結果を Fig. 7 に示す。まず, 透明な水を流すことにより, プレート内で油がトラップされる。次に, 着色した水を流入させる。トラップされたオイルは当然, 流動していない。油泡がトラップされていることにより, 油泡の周囲の水も流動していない。これはおよそ油泡から 2 ポア程度の範囲で広がっている。結果として, 水は一定の領域しか流動していない。そこにサーファクタントを圧入しても, 流動可能な領域しか流動することができず, 油と水の界面に接触させることを目的として圧入したサーファクタントが機能していないことが分かる。

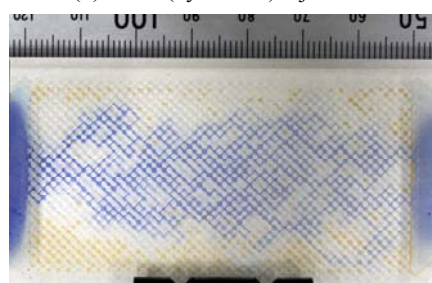
次に, サーフアクタントの流動可能域だけの流動のより, トラップされている油泡の界面に到達できていない現象を改善するために, 流動可能域にガスを注入し, ブロックさせる方法を試みた。ガス圧入を行った場合の油の生産の様子を Fig. 8 に示す。油で満たしたポーラスプレートに対して, 水 (blue), ガス, サーフアクタントの順で圧入した。先ほどと同様に, 水の圧入により油がトラップされる。その後, ガスを圧入すると, ガスは主に水で占められている流動可能域を選択的に通過し, 生産性の向上は見られない。しかし, その



(a) water (without dye) injection



(b) water (dyed blue) injection



(c) surfactant (dyed blue) injection

Fig. 7 Pore-scale visualization of flow paths of surfactant after oil entrapment. Surfactant hardly reach interface between water and trapped oil.

後、サーファクタントを圧入すると、ガスが分散し、ガスのポアネットワークが流動域でトラップされる。ガスのトラップがサーファクタントに対して、ブロックの役目を果たし、油と水の界面にサーファクタントが流入・接触するようになる。

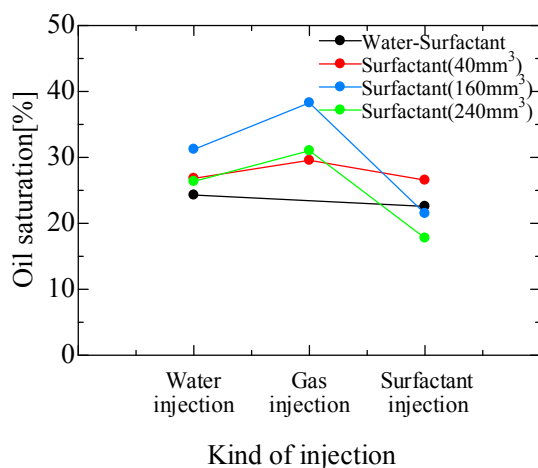
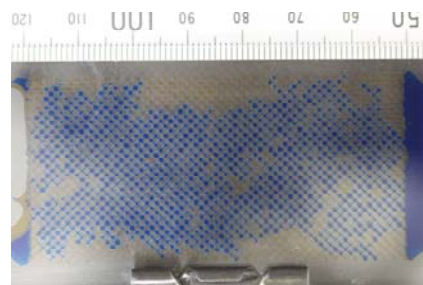
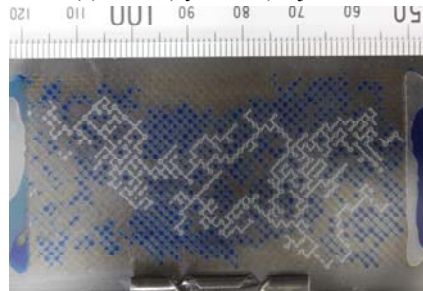


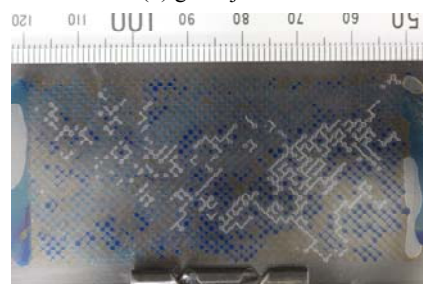
Fig.9 Improved oil recovery by means of gas injection prior to surfactant injection.



(a) water (dyed blue) injection



(b) gas injection



(c) surfactant (dyed blue) injection

Fig. 8 Pore-scale visualization of WAG scheme to enhance the penetration of surfactant to the interface between trapped oil blobs and water.

り、生産性が向上している。

サーファクタントをパラメータ変化させることによる生産性の変化の観察を行った。各工程におけるプレート内の残留油の割合を Fig.9 に示す。ガス圧入する過程で、プレート入口に残っていた油がガスにより押し出されることが原因となり、Gas-Injection において残留油の割合が増加している。そのため、示したグラフは定量的なデータとなっていないが、ガス圧入によりサーファクタントが効果的に働いていることは読み取ることができる。

3. X線CTを用いた充填層におけるオイルトラップメカニズムの解明

3.1 実験装置と手順

可視化にはマイクロフォーカス X 線 CT 装置 (Comscantechno Co. Ltd. ScanXmate-RB090SS)を用いた。Fig. 10 に実験装置の概要を示す。取得画像のピクセルサイズは X 線源と検出器および被測定部の相対的な距離の比に依存する。被測定部を小さくし、X 線源に近づけるとより高倍率撮像が可能となる。これらを考慮して、内径 10 mm のチューブに高さ 10 mm に渡り平均直径 400 μm のガラスビーズを充填し多孔体とした。X 線吸収能を変化させ、コントラストをつけるために、ドデカンに 10 wt% のヨウ化ドデカンを混

せて油を模擬した．水には精製水を用いた．充填層内部を最初，油で満たし，一定流速(0.06 ml/h, $Ca = 4.3 \times 10^{-9}$)で水を注入した．すべての実験装置はX線CT装置内部に格納し，注入を継続したまま，30 min. 毎に一定の時間間隔でスキャンした．608×608 pixelのスライス画像を610枚取得した．ピクセルサイズは3方向ともに，20.799 $\mu\text{m}/\text{pixel}$ であった．X線CT画像に基づいて算出した空隙率は0.374で，通常，ランダム充填の単一球充填層の空隙率は約0.38といわれているので，高い精度で一致している．

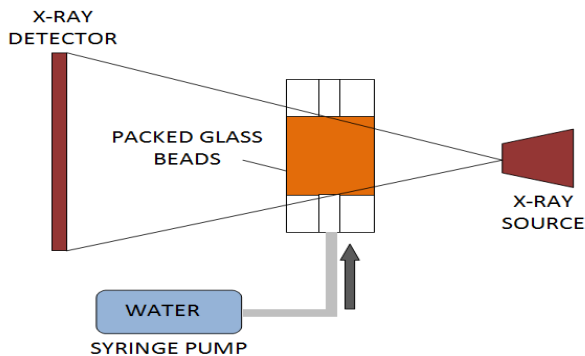


Fig. 10 Experimental setup.

3.2 水注入時の過渡現象

油で満たされた充填層に水を圧入した際の過渡的なプロセスについて説明する．Fig. 11に油飽和率の時間変化を示す．水の注入に伴って油の飽和率は徐々に減少し，約30%に低下すると，油はトラップされそれ以上，生産が進まなくなる．注入開始後，おおよそ360 minで充填層全域にわたり，トラップ状態に達しており，その後，510 min. まで飽和率はほとんど変化していない．

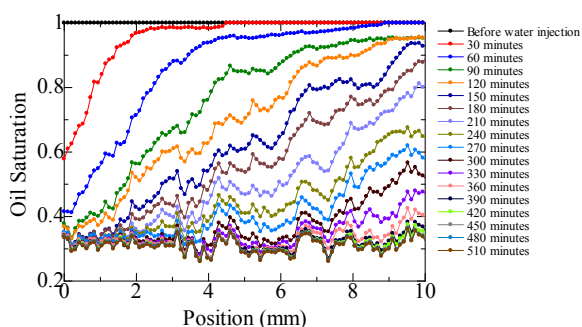


Fig. 11 Distribution of oil saturation along the packed bed of glass beads for every 30 min.

Fig. 11に示した油の飽和率 S_n から， $\zeta = 0$ から $\zeta = z$ の区間に単位断面面積あたりに含まれる油の体積は

$$V_n(z, t) = \int_0^z \phi(\zeta) S_n(\zeta, t) d\zeta \quad (2)$$

で表される．ここで， ϕ は空隙率である．質量保存の法則から油(n)と水(w)の局所相速度は

$$U_n(z, t) = U(t) F_n^{inj}(t) - \frac{\partial V_n(z, t)}{\partial t} \quad (3)$$

$$U_w(z, t) = U(t) F_w^{inj}(t) - \frac{\partial V_w(z, t)}{\partial t} \quad (4)$$

で表される⁽⁸⁾．ここで， U_α は相 α の局所相速度， U は全ダルシー速度， F_α^{inj} は相 α の注入割合(今回の場合， $F_w^{inj} = 1$, $F_n^{inj} = 0$)を示す．Fig. 11にこれらの解析手法を適用して，算出した局所ダルシー相速度の時間発展とダルシー相速度と飽和率の関係をFigs. 12, 13に示す．油の飽和率が1に近いとき，油は注入速度に近い速度で流動するが，水飽和率の上昇とともに急激に流動性が低下し，水飽和率が70%に達した時点で流動性を失いトラップされている．なお，充填層を横断した圧力損失を計測すると，これらの関係から相対浸透係数を推定することができる．X線CTを用いて局所的な飽和率を求めることにより，きわめて高精度に相対浸透係数の計測が可能であることが示唆される．また，Goodfieldら⁽⁸⁾により

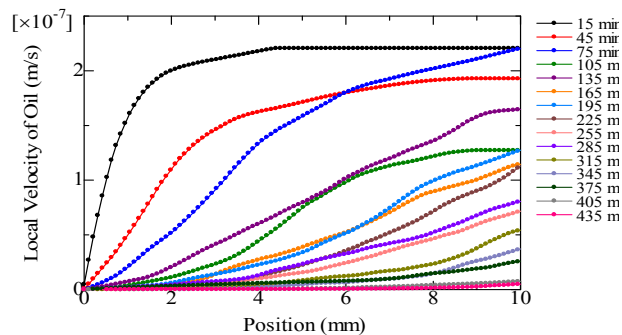


Fig. 12 Evolution of local oil phase velocity.

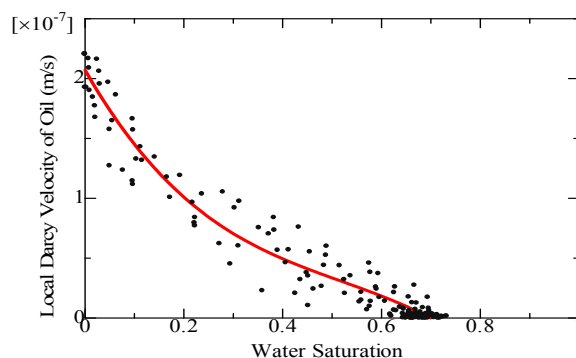


Fig. 13 Relation between local phase velocity of oil and water saturation.

提案されているように，流速を変えて計測を繰り返すと，圧力勾配を計測することなく，相対浸透率や毛管圧曲線を推定することが可能である．

3.3 ポアスケールにおけるオイルトラップメカニズム

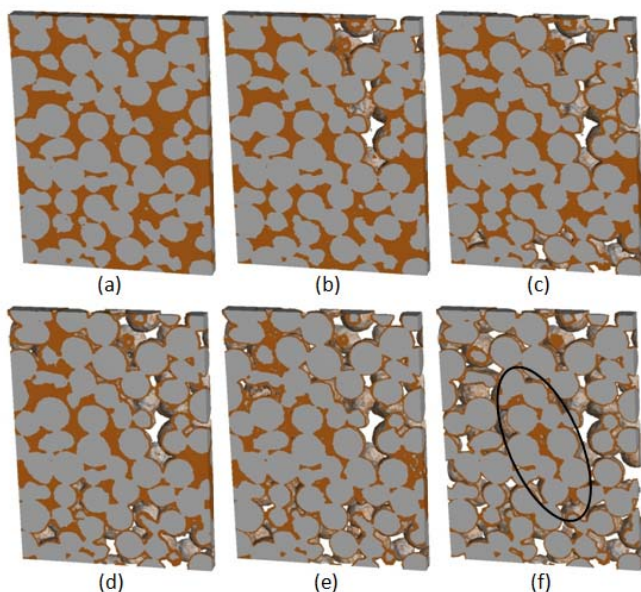


Fig. 14 Oil (orange) entrapment; oil saturations (a) 100%. (b) 66.64%. (c) 45.14%. (d) 40.33%. (e) 37.26%. (f) 31.27%.

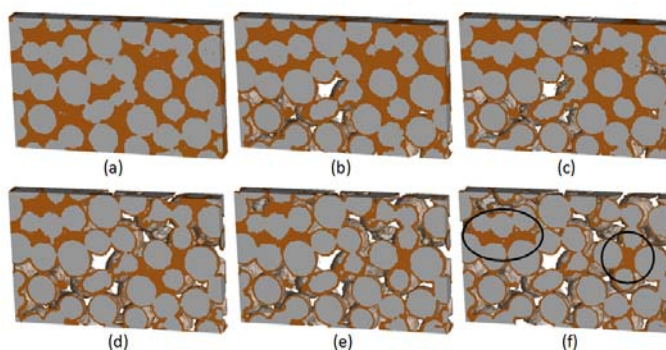


Fig. 15 Single and cluster entrapment; oil saturation (a) 100%. (b) 60.79%. (c) 51.5%. (d) 45.61%. (e) 37.8%. (f) 31.12%.

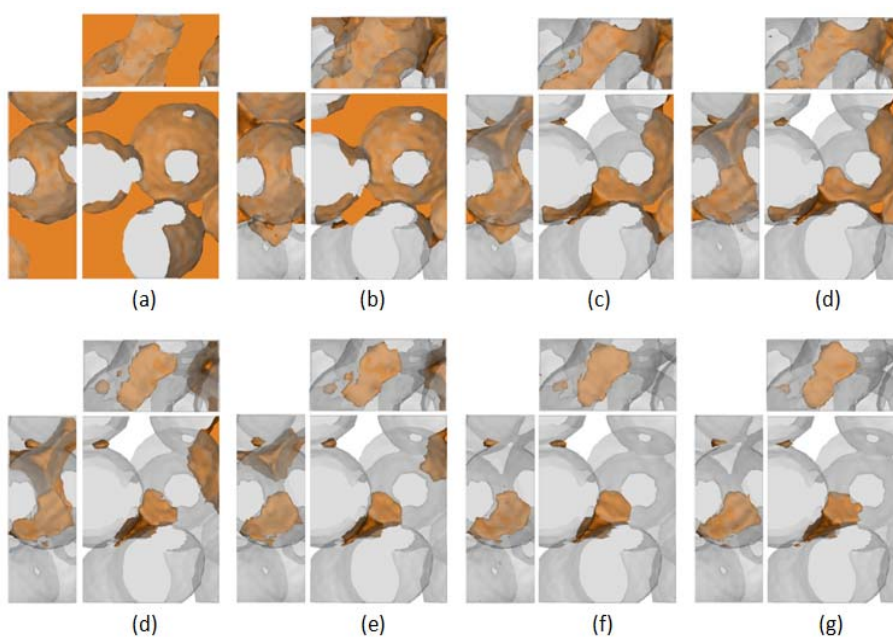


Fig. 16 Orthogonal projection of trapping process in single pore

管力が支配的になっている⁽⁵⁾。よって、濡れにくい相である油で満たされた充填層に濡れやすい相である水が圧入されるこのプロセスでは、多孔質のポア径やスロート径の違いにより、毛管力が変化し、侵入速度差が生じる。Figs. 14, 15に本実験で観察された油のトラップに至るまでの過程を示す。水は鉛直上向きに打ち込まれ、水と油を比較すると油が軽く油には浮力が作用し生産に適している。また、水と油の粘性は水の方が粘性が高く、粘性比も両者の界面を安定させる方向に作用する。このような、好条件にもかかわらず、水と油の界面は複雑に分岐している(e.g. Fig. 14b)。油は初期状態において、完全に、多孔質体を飽和しており、至る所で連続相を形成している。水が侵入してくると水と油の界面は複雑な形状を示し、Fig. 14b, cに示されるように、水は選択的なパスを形成して侵入する。このとき、油はまだ連続相を維持している。さらに、水が侵入してくると、油は連続相を維持したまま、生産が継続されるが、ある油で満たされたポアの周囲が水で満たされるようになる(Fig. 14 d, e)。このとき、油には浮力が作用しており、連続相を通じて生産される場合と、連続性が途切れ、非連続相となり、毛管力によりトラップされる可能性がある。Fig. 14 fの場合、連続が途切れ、トラップされている。これまでに、このように油が切り離される過程では多孔質媒体を構成する固体の表面荒さを通じて濡れやすい相が侵入し、ポアのスロート部分での曲率形状により蓄積が進み、最終的にスナップオフされると説明されてきた。しかしながら、本研究においてポアスケールで観察した結果では、最終的な非連続相への移行は、スロート部分に濡れやすい相がピストン状に突入して、油を切断していることが見て取れる(Fig. 14f, Fig. 15f)。

Fig. 16 に単一のポア内部でトラップされたオイル液泡がどのような過程を経て生じたかを示す。この図では、一つのポアに注目し、そのポアを正面、上、左側面から透視した様子を示している。最初、ポアは完全にオイルで飽和しているが、徐々に油が侵入し、Fig. 16bで下のポアが、Fig. 16cで上部のポアが水に置き換わっている。Fig. 16dでは右方向のポアを介して、油はまだ連続相を維持しているが、Fig. 16eの時点で連続が途切れ、非連続相へと移行している。切られた連続相は後退し、液泡から離れ、最終的に油は単一ポアの中心部分を占める形でトラップされている。油泡には浮力が作用しているが、上方へと移動するためには狭いポアスロート部分を通過するために変形する必要がある。界面張力により、油には球形状を保とうとする力が作用するため、変形することができず、実質的にトラップされてしまう。

4. まとめ

ポーラスプレートを用いて代表的なEOR手法である、界面活性剤攻法とWAG法のポアスケールでの現象を観察した。

(1) 界面活性剤により界面張力が低下し、生産性が向上することが確認された。油は一部エマルジョン化しており、スナップオフメカニズムに変化が生じている。

(2) ガスを圧入しないときは、サ

ーファクタントがトラップされた油やその周りの水の界面に対して届かないために、油の生産性を向上することはできない。

(3) ガスの圧入を行うことにより、油の生産性の向上は見られないが、サーファクタントを流した際に、ガスのトラップを形成することができる。

(4) ガスのトラップは、サーファクタントの流れをブロックし、分散することにより、水と油の界面に流れ込むことを助け、油の生産性を向上させる。

マイクロフォーカス X 線 CT 装置を用いて、ガラスビーズ充填層内部におけるオイルトラップ現象を3次元で可視化した。従来、オイルトラップには多孔質媒体の表面荒さを伝わり侵入する濡れやすい相が、ポアのくびれ部分の曲率により集積し、スナップオフされると考えられてきた。しかしながら、充填層においてはポアネットワークスケールでのトラップが大半であり、最終的に濡れにくい相がピストン状に連続相から切断されることでトラップされることが明らかとなった。

謝辞: 本研究は先端工学教育研究プロジェクトの助成を得た。

参 考 文 献

- (1) Shah, D.O., Schechter, R.S., Improved oil recovery by surfactant and polymer flooding, Academic Press, 1977
- (2) Arriola, A., Willhite, G.P., Green, D.W., Trapping of oil drops in a noncircular pore throat and mobilization upon contact with a surfactant, SPE J 23, 99-114, 1983
- (3) Okabe, H., Enhanced Oil Recovery by CO₂ and CO₂ Geological Sequestration, Journal of MMIJ Vol.124(2008) No.12, pp.681-693
- (4) Vizika, O., Payatakes, A.C., Parametric experimental study of forced imbibitions in porous media, PCH PhysicoChemical Hydrodynamics, 11, 2, 187-204, 1989
- (5) Morrow, N.R., Songkran, B.: Effect of viscous and buoyancy forces on nonwetting phase trapping in porous media. In: Shah (eds.), Surface Phenomena in Enhanced Oil Recovery, pp. 387-411. Plenum Press, New York (1981)
- (6) Mogensen, K., Stenby, E.H., Zhou, D., Studies of waterflooding in low-permeable chalk by use of X-ray CT scanning, J Pet Sci Eng, 23, 1-10, 2001
- (7) Benyamin Yadali, Riyaz Kharrat: Analysis of Microscopic Displacement Mechanisms of Dilute Surfactant Flooding in Oil-wet and Water-wet Porous Media. Transport in Porous Media, Springer Netherlands, 09.04.2009.vol 81,no. 1,pp. 1-19
- (8) Goodfield G, Goodyear SG, Townsley PH (2001) New Coreflood Interpretation Method for Relative Permeabilities Based on Direct Processing In-Situ Saturation Data. The 2001 SPE Annual Technical Conference and Exhibition, SPE 71490